



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 101 49 015 A 1**

⑤ Int. Cl. 7:
C 08 F 2/01
C 08 F 2/02

②1 Aktenzeichen: 101 49 015.1
②2 Anmeldetag: 4. 10. 2001
④3 Offenlegungstag: 24. 4. 2003

DE 101 49 015 A 1

⑦1 Anmelder:
BASF Coatings AG, 48165 Münster, DE
⑦4 Vertreter:
Dres. Fitzner, Münch & Kluin, 40878 Ratingen

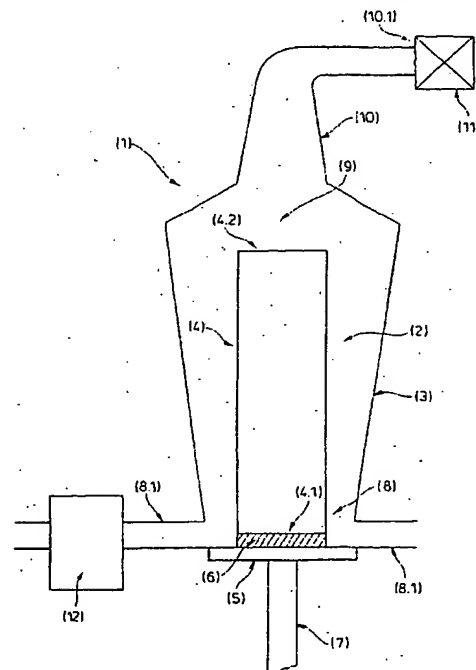
⑦2 Erfinder:
Jung, Werner-Alfons, Dr., 59387 Ascheberg, DE;
Rink, Heinz-Peter, Dr., 48153 Münster, DE;
Meinecke, Heinrich, Dr., 48163 Münster, DE; Krull,
Josef, 59269 Beckum, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Verfahren zur kontinuierlichen Polymerisation in Masse und Taylorreaktor für seine Durchführung

⑤7 Taylorreaktor (1) gemäß Fig. 1, umfassend
1. ein ringspaltförmiges Reaktionsvolumen (2), das sich in Durchflussrichtung verbreitert und durch eine äußere Reaktorwand (3), einen Rotor (4), der an dem Ende (4.1) im Reaktorboden (5) drehbar gelagert und am anderen Ende (4.2) nicht gelagert ist, und einen Reaktorboden (5) mit einer Dichtung (6) für die Antriebswelle (7) definiert wird,
2. einen Einlassbereich (8) oberhalb des Reaktorbodens (5) mit mindestens einem seitlichen Zulauf (8.1) und/oder mindestens einem Zulauf (8.1) durch den Reaktorboden (5) für die Edukte und/oder die Prozessstoffe,
3. einen Auslassbereich (9), der oberhalb des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeordnet ist, sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) hinaus in Durchflussrichtung weiter verbreitert und sich anschließend zu einem Produktablauf (10) hin verjüngt,
4. einen Produktablauf (10), der sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich (9) hin öffnet und sich in die andere Richtung hin verjüngt, sowie
5. ein Druckhalteventil (11);
und seine Verwendung zur kontinuierlichen Polymerisation in Masse.



DE 101 49 015 A 1

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein neues Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomers durch die (Co)Polymerisation Blockmischpolymerisation und Pfropfmischpolymerisation in Masse. Außerdem betrifft die vorliegende Erfindung einen neuen Taylorreaktor für die Durchführung dieses Verfahrens.

[0002] Im folgenden wird die (Co)Polymerisation, Blockmischpolymerisation und Pfropfmischpolymerisation zusammenfassend als "Polymerisation" bezeichnet. Demgemäß werden die (Co)Polymerisate, die Blockmischpolymerisate und Pfropfmischpolymerisate zusammenfassend als "Polymerisate" bezeichnet.

[0003] Bekanntermaßen werden bei der kontinuierlichen Polymerisation in Masse olefinisch ungesättigte Monomere in der Gegenwart geringer Mengen von organischen Lösemitteln, d. h. bis zu 25 Gew.-% der Reaktionsmischung, oder in deren Abwesenheit radikalisch, anionisch oder kationisch polymerisiert. Bei der Polymerisation ändert sich die kinematische Viskosität ν im Verlauf der Reaktion mindestens um den Faktor 10, sodass die Handhabung der Polymerisate schwierig wird. Es ist daher oft notwendig, die Polymerisation nur bis zu einem vergleichsweise geringen Umsatz, beispielsweise maximal 70 Mol%, zu führen, damit die Reaktionsgemische aus Polymerisaten und Monomeren noch gut durchmischt und aus den Reaktoren ausgetragen werden können. Anschließend müssen die unumgesetzten Monomeren von den Polymerisaten abgetrennt werden, was sicherheitstechnisch, energetisch und verfahrenstechnisch aufwendig ist. Dabei können Monomere, die nur wenig flüchtig sind, häufig gar nicht abgetrennt werden, sodass der Monomergehalt der Polymerisate unerwünscht hoch bleibt.

[0004] In der deutschen Patentanmeldung DE 198 28 742 A1 wird vorgeschlagen, die Polymerisation olefinisch ungesättigter Monomere in Masse in einem Taylorreaktor unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung durchzuführen.

[0005] Taylorreaktoren, die der Umwandlung von Stoffen unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung dienen, sind seit langem bekannt. Sie bestehen in wesentlichen aus zwei koaxialen, konzentrisch angeordneten Zylindern, von denen der äußere feststehend ist und der innere rotiert. Als Reaktionsraum dient das Volumen, das durch den Spalt der Zylinder gebildet wird. Mit zunehmender Winkelgeschwindigkeit ω des Innenzylinders treten einer Reihe unterschiedlicher Strömungsformen auf, die durch eine dimensionslose Kennzahl, die sogenannte Taylor-Zahl Ta , charakterisiert sind. Die Taylor-Zahl ist zusätzlich zur Winkelgeschwindigkeit des Rührers oder Rotors auch noch abhängig von der kinematischen Viskosität ν des Fluids im Spalt und von den geometrischen Parametern, dem äußeren Radius des Innenzylinders r_i , dem inneren Radius des Außenzylinders r_a und der Spaltbreite d , der Differenz beider Radien, gemäß der folgenden Formel:

$$Ta = \omega \cdot r_i d (d \nu^{-1} (d/r_i))^{1/2} \quad (I)$$

mit $d = r_a - r_i$.

[0006] Bei niedriger Winkelgeschwindigkeit bildet sich die laminare Couette-Strömung, eine einfache Scherströmung, aus. Wird die Rotationsgeschwindigkeit des Innenzylinders weiter erhöht, treten oberhalb eines kritischen Werts abwechselnd entgegengesetzt rotierende (kontrarotierende) Wirbel mit Achsen längs der Umfangsrichtung auf. Diese sogenannten Taylor-Wirbel sind rotationssymmetrisch, be-

sitzen die geometrische Form eines Torus (Taylor-Wirbelringe) und haben einen Durchmesser, der annähernd so groß ist wie die Spaltbreite. Zwei benachbarte Wirbel bilden ein Wirbelpaar oder eine Wirbelzelle.

[0007] Dieses Verhalten beruht darauf, dass bei der Rotation des Innenzylinders mit ruhendem Außenzylinder die Fluidpartikel nahe des Innenzylinders einer stärkeren Zentrifugalkraft ausgesetzt sind als diejenigen, die weiter vom inneren Zylinder entfernt sind. Dieser Unterschied der wirkenden Zentrifugalkräfte drängt die Fluidpartikel vom Innen- zum Außenzylinder. Der Zentrifugalkraft wirkt die Viskositätskraft entgegen, da bei der Bewegung der Fluidpartikel die Reibung überwunden werden muß. Nimmt die Rotationsgeschwindigkeit zu, dann nimmt auch die Zentrifugalkraft zu. Die Taylor-Wirbel entstehen, wenn die Zentrifugalkraft größer als die stabilisierende Viskositätskraft wird.

[0008] Wird der Taylorreaktor mit einem Zu- und Ablauf versehen und kontinuierlich betrieben, resultiert eine Taylor-Wirbelströmung mit einem geringen axialen Strom. Dabei wandert jedes Wirbelpaar durch den Spalt, wobei nur ein geringer Stoffaustausch zwischen benachbarten Wirbelpaaren auftritt. Die Vermischung innerhalb solcher Wirbelpaare ist sehr hoch, wogegen die axiale Vermischung über die Paargrenzen hinaus nur sehr gering ist. Ein Wirbelpaar kann daher als gut durchmischter Rührkessel betrachtet werden. Das Strömungssystem verhält sich somit wie ein ideales Strömungsrohr, indem die Wirbelpaare mit konstanter Verweilzeit wie ideale Rührkessel durch den Spalt wandern.

[0009] Ändert sich aber die Viskosität ν des Fluids mit fortschreitender Umwandlung in axialer Durchflussrichtung so stark, wie dies bei der Polymerisation in Masse der Fall ist, verschwinden die Taylor-Wirbel oder bleiben ganz aus. Im Ringspalt ist dann noch die Couette-Strömung, eine konzentrische, laminare Schichtenströmung, zu beobachten. Hier kommt es zu einer unerwünschten Veränderung der Durchmischungs- und Strömungsverhältnisse im Taylorreaktor. Er weist in diesem Betriebszustand Strömungscharakteristika auf, die denen des laminar durchströmten Rohres vergleichbar sind, was ein erheblicher Nachteil ist. So kommt es beispielsweise bei der Polymerisation in Masse zu einer unerwünscht breiten Molmassenverteilung und chemischen Uneinheitlichkeit der Polymerisate. Außerdem können aufgrund der schlechten Reaktionsführung erhebliche Mengen an Restmonomeren resultieren, welche dann aus dem Taylorreaktor ausgetragen werden müssen. Es kann aber auch zur Koagulation und Ablagerung von Polymerisaten kommen, was u. U. sogar zum Verstopfen des Reaktors oder des Produktauslasses führen kann. Insgesamt können nicht mehr die gewünschten Produkte, wie etwa Polymerisate mit vergleichsweise enger Molmassenverteilung, erhalten werden, sondern nur noch solche, die in ihrem Eigenschaftsprofil den Anforderungen nicht entsprechen.

[0010] Um diese Probleme zu lösen, wurde ein Taylorreaktor bereitgestellt, der

- a) eine äußere Reaktorwand und einen hierin befindlichen konzentrisch angeordneten Rotor, einem Reaktorboden und einem Reaktordeckel, welche zusammen das ringspaltförmige Reaktorvolumen definieren,
- b) mindestens eine Vorrichtung zur Zudosierung von Edukten sowie
- c) eine Vorrichtung für den Produktablauf,

aufweist, wobei

- d) bei der Polymerisation eine Änderung der Viskosität ν des Reaktionsmediums eintritt und
- e) die Reaktor-Wand und/oder der Rotor geometrisch

derart gestaltet ist oder sind, dass auf im wesentlichen der gesamten Reaktorlänge im Reaktorvolumen die Bedingungen für die Taylor-Wirbelströmung erfüllt sind.

[0011] Die Bedingung e) wird dadurch erfüllt, dass sich das ringspaltförmige Reaktorvolumen in Durchflussrichtung verbreitert, insbesondere konisch verbreitert. Dadurch vermag der bekannte Taylorreaktor das Problem der Aufrechterhaltung der Taylorströmung bei starker Erhöhung der kinematischen Viskosität v im Reaktionsmedium im wesentlichen zu lösen.

[0012] Bei dem bekannten Taylorreaktor wird das ringspaltförmige Reaktorvolumen durch den konzentrisch angeordneten Rotor, den Reaktorboden und den Reaktordeckel definiert. Dies bedingt, dass der Produktauslass seitlich am Taylorreaktor oder im Reaktordeckel angeordnet werden muss und nicht kantenlos gestaltet werden kann. Mit dieser Konfiguration kann aber ein störungsfreier Produktauslass nur schlecht realisiert werden, weil Kanten und Totvolumina eine Ablagerung von Polymerisaten bewirken. Außerdem kann in diesem Bereich die in dem hochviskosen Reaktionsmedium noch vorhandene Taylorströmung leicht zusammenbrechen, sodass sich die Durchmischung von Monomeren und Polymerisaten verschlechtert und die Neigung zu Ablagerung an Kanten und in Totvolumina verstärkt wird.

[0013] Außerdem befindet sich bei dem bekannten Taylorreaktor die Durchführung der Antriebswelle für den Rotor im Reaktordeckel, d. h. der Rotor wird in dem Bereich angetrieben, worin die kinematische Viskosität v am höchsten ist, was die Dichtungen und Verbindungen einer besonders stark mechanische Belastung aussetzt.

[0014] Wegen des nachteiligen Zusammenwirkens von Strömung und geometrischer Konfiguration vermag der bekannte Taylorreaktor zum einen noch nicht alle sicherheitstechnischen und verfahrenstechnischen Problemen, die bei der Polymerisation in Masse auftreten, zu lösen und zum anderen ist es noch nicht möglich, den Umsatz der Monomeren so weit zu erhöhen, dass eine weitgehende Monomerenfreiheit und eine enge Molekulargewichtverteilung und Uneinheitlichkeit des Molekulargewichts der Polymerisate erzielt wird.

[0015] Das Problem einer nicht ausreichenden Durchmischung der Edukte kann zwar bis zu einem gewissen Umfang durch die Vorschaltung eines Mischaggregats vor den Zulauf der Edukte gelöst werden, wie dies in der deutschen Patentanmeldung DE 199 60 389 A1 beschrieben wird, indes treten die vorstehend geschilderten Probleme bei der Polymerisation in Masse im Auslassbereich nach wie vor auf.

[0016] Aus dem amerikanischen Patent US 4,174,097 A ist ein Taylorreaktor bekannt, bei dem der Rotor im Einlassbereich der Edukte drehbar gelagert ist. Der Rotor ist an seinem anderen Ende nicht gelagert, sondern endet im wesentlichen vor dem Auslassbereich, der an seiner breitesten Stelle denselben Durchmesser wie äußere Reaktorwand hat. Der Auslassbereich verengt sich trichterförmig zu einem Auslassrohr. Der bekannte Taylorreaktor dient dem Durchmischen von Flüssigkeiten von unterschiedlicher Viskosität und elektrischer Leitfähigkeit. Außerdem kann er der Umsetzung von Polyisocyanaten mit Polyolen dienen.

[0017] Inwieweit er für die Polymerisation olefinisch ungesättigter Monomere in Masse eingesetzt werden kann, geht aus dem amerikanischen Patent nicht hervor.

[0018] Bei dem bekannten Taylorreaktor erfolgen die Durchführung der Antriebswelle durch den Reaktorboden und die Verbindung mit dem Rotor im Einlassbereich der Edukte. Allerdings weist der Rotor im Einlassbereich der Edukte nicht den Durchmesser auf, der für eine Einstellung

der Taylorströmung in diesem Bereich notwendig wäre. Des weiteren verbreitert sich das ringspaltförmige Reaktionsvolumen nicht in Durchflussrichtung. Zwar wird in dem amerikanischen Patent in Spalte 10, Zeilen 29 bis 33, angegeben, dass die konzentrischen Teile auch andere Konfigurationen als zylindrische haben können, beispielsweise im wesentlichen sphärische oder konische, welche Konfigurationen für die Polymerisation in Masse von besonderem Vorteil sind, wird aber nicht gelehrt.

[0019] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, einen neuen Taylorreaktor bereitzustellen, der die Nachteile des Standes der Technik nicht mehr länger aufweist, sondern der sich besonders gut für die Polymerisation olefinisch ungesättigter Monomere in Masse eignet, bei der sich die kinematische Viskosität v im Reaktionsmedium im Verlauf der Reaktion mindestens verzehnfacht. Dabei soll der neue Taylorreaktor ohne weiteres die Herstellung von Polymerisaten mit einem Umsatz $> 70 \text{ Mol\%}$ gestatten, ohne dass es zur Bildung von Gasblasen und/oder Ablagerung von Polymerisaten im ringspaltförmigen Reaktionsvolumen und/oder im Auslassbereich kommt. Außerdem soll der neue Taylorreaktor eine besonders lange Betriebsdauer und Gebrauchsdauer aufweisen.

[0020] Demgemäß wurde der neue Taylorreaktor (I) gefunden, der

1. ein ringspaltförmiges Reaktionsvolumen (2), das
 - 1.1 sich in der Durchflussrichtung des Reaktionsmediums verbreitert und zu einem Auslassbereich (9) hin öffnet und durch

- 1.1.1 eine äußere Reaktorwand (3),

- 1.1.2 einen konzentrisch angeordneten Rotor (4), der an seinem einen Ende (4.1) im Reaktorboden (5) drehbar gelagert und ein seinem anderen Ende (4.2) unterhalb des Auslassbereichs (9) nicht gelagert ist, wobei der Rotor (4) an seinem gelagerten Ende (4.1) den größten Durchmesser oder den gleichen Durchmesser wie an seinem nicht gelagerten Ende (4.2) hat, und

- 1.1.3 einen Reaktorboden (5) mit einer Dichtung (6) für die Antriebswelle (7)

definiert wird,

2. einen Einlassbereich (8) im engsten Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) oberhalb des Reaktorbodens (5) mit mindestens einem seitlichen Zulauf (8.1) und/oder mindestens einem Zulauf (8.1) durch den Reaktorboden (5) für die Edukte und/oder die Prozessstoffe,

3. einen von Totvolumina freien Auslassbereich (9), der

- 3.1 oberhalb des nicht gelagerten Ende (4.2) des Rotors (4) und des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeordnet ist,

- 3.2 sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) hinaus in Durchflussrichtung weiter verbreitert oder gleichbleibt und

- 3.3 sich anschließend zu einem Produktablauf (10) hin verengt.

4. einen von Totvolumina freien Produktablauf (10), der

- 4.1 sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich (9) hin öffnet und

- 4.2 sich in die andere Richtung hin verjüngt,

sowie

5. an dem dem Auslassbereich (9) entgegengesetzten Ende (10.1) des Produktablaufs (10) ein Druckhalteventil (11) umfasst.

[0021] Im Folgenden wird der neue Taylorreaktor als "erfindungsgemäßer Taylorreaktor" bezeichnet.

[0022] Außerdem wurde das neue Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten durch die radikalische, anionische oder kationische (Co)Polymerisation, Blockmischpolymerisation oder Pfropfmischpolymerisation (Polymerisation) mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse in einem Taylorreaktor gefunden, bei dem man

(I) mindestens ein olefinisch ungesättigtes Monomer über mindestens einen seitlichen Zulauf (8.1) und/oder mindestens einen Zulauf (8.1) durch den Reaktorboden (5) in den Einlassbereich (8) des erfindungsgemäßen Taylorreaktors (1) dosiert, wobei der Einlassbereich (8) sich im engsten Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) oberhalb des Reaktorbodens (5) befindet, und

(II) in dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (2) zumindest teilweise unter den Bedingungen der Taylorströmung (co)polymerisiert, blockmischpolymerisiert oder pfropfmischpolymerisiert (Polymere 4), wobei das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2)

1.1 sich in der Durchflussrichtung des Reaktionsmediums verbreitert und zu dem Auslassbereich (9) hin öffnet und durch

1.1.1 die äußere Reaktorwand (3),

1.1.2 den konzentrisch angeordneten Rotor (4), der an seinem einen Ende (4.1) im Reaktorboden (5) drehbar gelagert und an seinem anderen Ende (4.2) unterhalb des Auslassbereichs (9) nicht gelagert ist, wobei der Rotor (4) ein seinem gelagerten Ende (4.1) den größten Durchmesser oder den gleichen Durchmesser wie an seinem nicht gelagerten Ende (4.2) hat, und

1.1.3 den Reaktorboden (5) mit der Dichtung (6) für die Antriebswelle (7)

definiert wird,

(III) das resultierende flüssige (Co)Polymerisat, Blockmischpolymerisat oder Pfropfmischpolymerisat (Polymerisat) aus dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (2) in den von Totvolumina freien Auslassbereich (9) fördert, der

3.1 oberhalb des nicht gelagerten Ende (4.2) des Rotors (4) und des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeordnet ist,

3.2 sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) hinaus in Durchflussrichtung weiter verbreitert oder gleichbleibt und

3.3 sich anschließend zu dem Produktablauf (10) hin verjüngt,

(IV) das Polymerisat aus dem Auslassbereich (9) in den von Totvolumina freien Produktablauf (10) fördert, der

4.1 sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich (9) hin öffnet und

4.2 sich in die andere Richtung hin verjüngt, und

(V) das Produkt über das an dem dem Auslassbereich (9) entgegengesetzten Ende (10.1) des Produktablaufs (10) befindliche Druckhalteventil (11) austrägt.

[0023] Im folgenden wird das neue Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten durch die ra-

dikalische, anionische oder kationische Polymerisation mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse in einem Taylorreaktor als "erfindungsgemäßes Verfahren" bezeichnet.

[0024] Im Hinblick auf den Stand der Technik war es überraschend und für den Fachmann nicht vorhersehbar, dass die Aufgabe, die der vorliegenden Erfindung zugrundelag, mit Hilfe des erfindungsgemäßen Taylorreaktors und mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens gelöst werden konnte.

[0025] Der erfindungsgemäße Taylorreaktor war überraschenderweise für alle Stoffumwandlungen geeignet, bei denen sich die kinematische Viskosität v des Reaktionsmediums in Durchflussrichtung stark änderte.

[0026] Vor allem war es überraschend, dass der erfindungsgemäße Taylorreaktor und das erfindungsgemäße Verfahren die radikalische, anionische und kationische (Co)Polymerisation, Pfropfmischpolymerisation und Blockmischpolymerisation (zusammenfassend "Polymerisation" genannt) von olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse mit Umsätzen $> 70 \text{ Mol\%}$ gestattete. Noch mehr überraschte, dass Umsätze $> 98 \text{ Mol\%}$ problemlos erzielt werden konnten, ohne dass es in dem erfindungsgemäßen Taylorreaktor zur Bildung von störenden Gasblasen und/oder der Ablagerung und von (Co)Polymerisaten, Pfropfmischpolymerisaten und Blockmischpolymerisaten (zusammenfassend "Polymerisate" genannt) kam.

[0027] Des weiteren überraschte, dass der erfindungsgemäße Taylorreaktor aufgrund seiner vorteilhaften Konstruktion, insbesondere seiner vorteilhaften Konfiguration im Einlassbereich (8), im Auslassbereich (9) und im Produktablauf (10) sowie der Dichtung (6) der Antriebswelle (7) des Rotors (4) in dem Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2), in dem das Reaktionsmedium die niedrigste kinematische Viskosität v hatte, eine besonders lange Betriebs- und Gebrauchsdauer aufwies.

[0028] Des weiteren überraschte, dass der erfindungsgemäße Taylorreaktor und das erfindungsgemäße Verfahren eine besonders sichere Reaktionsführung der Polymerisation in Masse gestattete, weswegen die Polymerisate sehr sicher, zuverlässig und reproduzierbar hergestellt werden konnten. Aufgrund der sehr niedrigen Monomergehalte der Polymerisate konnten sie ohne weitere Reinigung den unterschiedlichsten Anwendungszwecken zugeführt werden, ohne dass dabei sicherheitstechnische, verfahrenstechnische, toxische und ökologische Probleme und Geruchsbelästigungen auftraten.

[0029] Der erfindungsgemäße Taylorreaktor umfasst ein ringspaltförmiges Reaktionsvolumen, das vorzugsweise einen kreisförmigen Umfang hat. Das ringspaltförmige Reaktionsvolumen ist definiert durch bzw. wird gebildet von einer äußeren Reaktorwand, einem hierin konzentrisch angeordneten Rotor und einem Reaktorboden mit einer Dichtung für die Antriebswelle des Rotors.

[0030] Die äußere Reaktorwand und der Rotor weisen über die gesamte Länge des Reaktionsvolumens hinweg – im Querschnitt gesehen – einen kreisförmigen Umfang auf. Unter dem Begriff "kreisförmig" ist streng kreisförmig, oval, elliptisch oder mehreckig mit abgerundeten Ecken zu verstehen. Aus Gründen der einfacheren Herstellbarkeit, des einfachen Aufbaus und der bedeutend einfacheren Aufrechterhaltung konstanter Bedingungen über die gesamte Länge des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens hinweg ist ein streng kreisförmiger Umfang von Vorteil.

[0031] Erfindungsgemäß ist die Innenwand der äußeren Reaktorwand und/oder die Oberfläche des Rotors glatt, oder rau, d. h., die betreffenden Flächen haben eine geringe oder hohe Oberflächenrauigkeit. Zusätzlich oder alternativ

hierzu kann die Innenwand der äußeren Reaktorwand und/oder die Oberfläche des Rotors ein reliefartiges radiales und/oder axiales, vorzugsweise radiales, Oberflächenprofil aufweisen, wie es beispielsweise in dem amerikanischen Patent US 4,174,907 A oder dem britischen Patent GB 1 358 157 beschrieben wird. Ist ein radiales Oberflächenprofil vorhanden, ist es vorteilhafter Weise in etwa oder genau so dimensioniert wie die Taylor-Wirbelringe.

[0032] Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn die Innenwand der äußeren Reaktorwand und die Oberfläche des Rotors glatt und profillos sind, um tote Winkel, in denen sich Gasblasen oder Edukte, Prozessstoffe und Produkte absetzen könnten, zu vermeiden.

[0033] Der erfindungsgemäße Taylorreaktor ist – in Längsrichtung gesehen – vertikal, horizontal oder in einer Lage zwischen diesen beiden Richtungen gelagert. Erfindungsgemäß von Vorteil ist die vertikale Lagerung. Wenn der erfindungsgemäße Taylorreaktor nicht horizontal gelagert ist, kann ihn das Reaktionsmedium entgegen der Schwerkraft von unten nach oben oder mit der Schwerkraft von oben nach unten durchströmen. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn das Reaktionsmedium entgegen der Schwerkraft bewegt wird.

[0034] Erfindungsgemäß verbreitert sich das ringspaltförmige Reaktionsvolumen in Durchflussrichtung kontinuierlich oder diskontinuierlich, insbesondere kontinuierlich, nach geeigneten mathematischen Funktionen. Beispiele geeigneter mathematischer Funktionen sind Geraden, mindestens zwei Geraden, die unter einem stumpfen Winkel aufeinander stoßen, Parabeln, Hyperbeln, e-Funktionen oder Kombinationen dieser Funktionen, die kontinuierlich oder diskontinuierlich, insbesondere kontinuierlich, ineinander übergehen. Vorzugsweise sind die mathematischen Funktionen Geraden, d. h., dass sich das ringspaltförmige Reaktionsvolumen in Durchflussrichtung konisch verbreitert. Das Ausmaß der Verbreiterung richtet sich nach dem erwarteten Anstieg der Viskosität des Reaktionsmediums in Durchflussrichtung und kann vom Fachmann anhand der Taylorformel I abgeschätzt und/oder anhand einfacher Vorversuche ermittelt werden.

[0035] Bei der konischen Verbreiterung des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens können die äußere Reaktorwand zylinderförmig und der Rotor konisch geformt sein, wobei der Rotor an seinem gelagerten Ende der größten Durchmesser hat. Alternativ können die äußere Reaktorwand konisch geformt und der Rotor zylinderförmig sein, d. h., dass sein Querschnitt über die gesamte Rotorlänge hinweg konstant ist. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn die äußere Reaktorwand konisch geformt und der Rotor zylinderförmig ist.

[0036] Der Rotor ist im Reaktorboden drehbar gelagert. Dabei ist er und seine nach außen zu einer Antriebsvorrichtung reichende Antriebswelle mit einer Dichtung abgedichtet. An seinem anderen Ende ist der Rotor nicht gelagert. Das freie Ende des Rotors kann planar, abgerundet oder kegelförmig sein.

[0037] Vorzugsweise handelt es sich bei der Dichtung um eine Gleitringdichtung.

[0038] Bei der Antriebsvorrichtung kann es sich um einen stufenlos regelbaren Elektromotor oder pneumatisch betriebenen Motor handeln, der über ein Getriebe mit der Antriebswelle verbunden ist. Die Leistung des Motors richtet sich nach der maximalen kinematischen Viskosität ν des Reaktionsmediums. Die Verbindung mit der Antriebswelle kann mit Hilfe einer Magnetkupplung erfolgen.

[0039] Im engsten Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens befindet sich oberhalb des Reaktorbodens mindestens ein Zulauf für die Edukte, insbesondere für die

olefinisch ungesättigten Monomere, sowie für geeignete Prozessstoffe, wie Katalysatoren und Initiatoren. Der Zulauf kann seitlich angeordnet oder durch den Reaktorboden gehen. Vorzugsweise sind mindestens zwei Zuläufe vorhanden, die seitlich angeordnet sind und/oder durch den Reaktorboden gehen. Gegebenenfalls können in Durchflussrichtung weitere Zuläufe vorgesehen sein, durch die weitere Edukte, Katalysatoren oder Initiatoren zudosiert werden können, sodass die Stoffumwandlungen, insbesondere die Polymerisation, mehrstufig durchgeführt werden können.

[0040] Die Edukte können dem Zulauf mit Hilfe üblicher und bekannter Verfahren und Vorrichtungen, wie Dosierpumpen, zugeführt werden. Die Vorrichtungen können mit Hilfe üblicher und bekannter mechanischer, hydraulischer, optischer und elektronischer Mess- und Regelvorrichtungen ausgestattet sein. Außerdem kann dem Zulauf eine der Mischvorrichtungen, wie sie beispielsweise in der deutschen Patentanmeldung DE 199 60 389 A1, Spalte 4, Zeile 55, bis Spalte 5, Zeile 34, beschrieben werden, vorgeschaltet sein.

[0041] Bei dem erfindungsgemäßen Taylorreaktor ist oberhalb des nicht gelagerten Endes des Rotors und des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens ein von Totvolumina freier Auslassbereich vorgesehen. Der Auslassbereich verbreitert in Durchflussrichtung sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen hinaus und verjüngt sich anschließend zu einem Produktablauf hin. Die Verbreiterung kann durch die vorstehend aufgeführten mathematischen Funktionen beschrieben werden, wobei Geraden bevorzugt sind. Demgemäß verbreitert sich der Auslassbereich vorzugsweise konisch. Gleiches gilt für die Verjüngung zum Produktablauf hin, d. h., dass die Verjüngung vorzugsweise konisch ist.

[0042] Der Auslassbereich und der Produktablauf sind durch die äußere Reaktorwand definiert.

[0043] Der Produktablauf öffnet sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich hin und verjüngt sich in die andere Richtung. Vorzugsweise hat der Produktablauf einen streng kreisförmigen Querschnitt. Die Öffnung des Produktablaufs kann konzentrisch über dem oberen Ende des Rotor angeordnet oder seitlich hiervon versetzt sein. Die Verjüngung kann durch die vorstehend aufgeführten mathematischen Funktionen beschrieben werden, wobei Geraden bevorzugt sind. Demgemäß verjüngt sich der Produktablauf vorzugsweise konisch. Vorzugsweise geht der Produktablauf nach der Verjüngung in ein zylinderförmiges Rohr über.

[0044] An dem dem Auslassbereich entgegengesetzten Ende des Produktablaufs ist ein Druckhalteventil angeordnet, das den Druck im erfindungsgemäßen Taylorreaktor aufbaut und regelt und durch das die Reaktionsprodukte, insbesondere die Polymerisate, kontinuierlich ausgetragen werden.

[0045] Dem Druckhalteventil können Auffang- und Vorratsbehälter, Mischvorrichtungen, wie Vorrichtungen zur Schmelzeemulgierung, Kühlbänder zum Erzeugen von Granulat oder weitere Reaktoren nachgeschaltet sein.

[0046] Die Reaktorwand im Einlassbereich, im Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens und im Auslassbereich sowie der Zulauf oder die Zuläufe und der Produktablauf können mit einem Heiz- oder Kühlmantel ausgerüstet sein, sodass sie im Gleich- oder im Gegenstrom geheizt oder gekühlt werden können. Des weiteren kann der erfindungsgemäße Taylorreaktor übliche und bekannte mechanische, hydraulische, optische und elektronische Mess- und Regelvorrichtungen, wie Temperaturfühler, Druckmesser, Durchflussmesser, optische oder elektronische Sensoren und Vorrichtungen zur Messung von Stoffkonzentrationen, Viskositäten und anderen physikalisch chemischen Größen enthalten, die ihre Messwerte an eine Datenverarbeitungsanlage

weiterleiten, die den gesamten Verfahrensablauf steuert.

[0047] Vorzugsweise ist der erfindungsgemäße Taylorreaktor druckdicht ausgelegt, sodass das Reaktionsmedium vorzugsweise unter einem Druck von 1 bis 100 bar stehen kann. Der erfindungsgemäße Taylorreaktor kann aus den unterschiedlichsten Materialien bestehen, solange diese von den Edukten und den Reaktionsprodukten nicht angegriffen werden und höherem Druck standhalten. Vorzugsweise werden Metalle, vorzugsweise Stahl, insbesondere Edelmetalle, verwendet.

[0048] Der erfindungsgemäße Taylorreaktor kann den unterschiedlichsten Verwendungszwecken zugeführt werden. Vorzugsweise wird er für Stoffumwandlungen unter den Bedingungen der Taylorströmung verwendet, bei denen sich die kinematische Viskosität ν im Reaktionsmedium in Durchflussrichtung erhöht.

[0049] Ein ganz besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Taylorreaktors ist dabei, dass das örtliche Nacheinander im Taylorreaktor mit dem zeitlichen Nacheinander von diskontinuierlichen oder halbkontinuierlichen (Dosier-)Prozessen verknüpft werden kann. Der erfindungsgemäße Taylorreaktor bietet somit den Vorteil eines kontinuierlichen quasi "einstufigen" Prozesses, so dass in dem zuerst durchströmten Teilstück des Taylorreaktors eine erste Reaktion ablaufen kann und in einem – in axialer Durchflussrichtung gesehen – zweiten oder weiteren Teilstück nach einem weiteren Zulauf zur Zudosierung von Edukten, Katalysatoren, Initiatoren und/oder anderen geeigneten Prozessstoffen eine zweite, dritte, etc. Reaktion.

[0050] Beispiele für Stoffumwandlungen, die in dem erfindungsgemäßen Taylorreaktor mit besonderen Vorteilen durchgeführt werden können, sind der Aufbau oder Abbau oligomerer und hochmolekularer Stoffe, wie z. B. die Polymerisation von Monomeren in Masse, Lösung, Emulsion oder Suspension oder durch Fällungspolymerisation.

[0051] Weitere Beispiele für solche Stoffumwandlungen sind

- polymeranaloge Reaktionen, wie die Veresterung, Amidierung oder Urethanisierung von Polymeren, welche Seitengruppen enthalten, die für solche Reaktionen geeignet sind,
- die Herstellung olefinisch ungesättigter, mit Elektronenstrahlen oder ultraviolettem Licht härtbaren Materialien,
- die Herstellung von Polyurethanharzen und modifizierten Polyurethanharzen wie acylierten Polyurethanen,
- die Herstellung von (Poly)Harnstoffen oder modifizierten (Poly)Harnstoffen,
- der Molekulargewichtsaufbau von Verbindungen, welche mit Isocyanatgruppen terminiert sind,
- oder Reaktionen, welche zur Bildung von Mesophasen führen, wie sie beispielsweise von Antonietti und Göltner in dem Artikel "Überstruktur funktioneller Kolloide: eine Chemie im Nanometerbereich" in Angewandte Chemie, Band 109, 1997, Seiten 944 bis 964, oder von über und Wengner in dem Artikel "Polyelectrolyte-Surfactant Complexes in the Solid State: Facile Building Blocks for Self-Organizing Materials" in Advanced Materials, Band 9, Heft 1, 1997, Seiten 17 bis 31, beschrieben werden.

[0052] Mit ganz besonderem Vorteil wird das erfindungsgemäße Verfahren für die Polymerisation von olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse angewandt, weil hierbei die besonderen Vorteile des erfindungsgemäßen Taylorreaktors besonders offen zu Tage treten.

[0053] So wird der erfindungsgemäße Taylorreaktor besonders bevorzugt für die Herstellung von chemisch einheitlich zusammengesetzten Polymerisaten und Copolymerisaten verwendet. Bei der Copolymerisation kann das schneller polymerisierende Comonomere oder können die schneller polymerisierenden Comonomeren über in axialer Richtung hintereinander angeordnete Zulaufen zudosiert werden, so daß das Comonomerenverhältnis über die gesamte Länge des Reaktors hinweg konstant gehalten werden kann.

[0054] Auch für die Pfropfmischpolymerisation wird der Taylorreaktor mit besonderen Vorteilen verwendet.

[0055] Hierbei kann das so genannte Backbone-Polymerisat separat hergestellt und über einem separaten Zulauf oder im Gemisch mit mindestens einem Monomeren in den erfindungsgemäßen Taylorreaktor eindosiert werden.

[0056] Das Backbone-Polymerisat kann aber auch in einem ersten Teilstück des erfindungsgemäßen Taylorreaktors hergestellt werden, wonach über mindestens einen weiteren, in axialer Richtung versetzten Zulauf mindestens ein Monomer, welches die Pfropfstäbe bildet, zudosiert wird. Das Monomer kann oder die Comonomeren können dann in mindestens einem weiteren Teilstück des erfindungsgemäßen Taylorreaktors auf das Backbone-Polymerisat aufgefropft werden. Sofern mehrere Comonomere verwendet werden, können sie einzeln über jeweils einen Zulauf oder als Gemisch durch einen Zulauf oder mehrere Zulaufe zudosiert werden. Werden mindestens zwei Comonomere einzeln und nacheinander durch mindestens zwei Zulaufe zudosiert, gelingt sogar die Herstellung von Pfropfstäben, welche für sich selbst gesehen Blockmischpolymerisate sind, in besonders einfacher und eleganter Weise.

[0057] Selbstverständlich kann dieses vorstehend beschriebene Konzept auch der Herstellung von Blockmischpolymerisaten als solchen dienen.

[0058] In analoger Weise kann mit Hilfe des erfindungsgemäßen Taylorreaktors die Herstellung von Kern-Schale-Latices besonders einfach und elegant verwirklicht werden. So wird zunächst im ersten Teilstück des erfindungsgemäßen Taylorreaktors der Kern durch Polymerisation mindestens eines Monomeren hergestellt. Über mindestens einen weiteren Zulauf wird mindestens ein weiteres Comonomer zudosiert und die Schale in mindestens einem weiteren Teilstück auf den Kern aufpolymerisiert. In dieser Weise können mehrere Schalen auf den Kern aufgebracht werden.

[0059] Auch die Herstellung von Polymerdispersionen kann mit Hilfe des erfindungsgemäßen Taylorreaktors erfolgen. Beispielsweise wird mindestens ein Monomer in homogener Phase, insbesondere in Lösung, in einem ersten Teilstück des erfindungsgemäßen Taylorreaktors (co)polymerisiert, wonach über mindestens eine weitere Vorrichtung (6) ein Fällungsmittel zudosiert wird; wodurch die Polymerdispersionen resultiert.

[0060] Bei allen Anwendungen weist der erfindungsgemäße Taylorreaktor den besonderen Vorteil einer großen spezifischen Kühlfläche auf, die eine besonders sichere Reaktionsführung gestattet.

[0061] Ganz besonders bevorzugt wird der erfindungsgemäße Taylorreaktor für die kontinuierliche Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten durch die radikalische, anionische oder kationische, insbesondere radikalische, (Co)Polymerisation, Blockmischpolymerisation oder Pfropfmischpolymerisation (Polymerisation) mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse nach dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendet.

[0062] Beispiele geeigneter Monomeren, welche für das erfindungsgemäße Verfahren in Betracht kommen, sind acyclische und cyclische, gegebenenfalls funktionalisierte Mo-

noolefine und Diolefine, vinylaromatische Verbindungen, Vinylether, Vinylester, Vinylamide, Vinylhalogenide, Allylether und Allylester, Acrylsäure, und Methacrylsäure und deren Ester, Amide und Nitrile und Maleinsäure, Fumarsäure und Itaconsäure und deren Ester, Amide, Imide und Anhydride.

[0063] Beispiele geeigneter Monoolefine sind Ethylen, Propylen, 1-Buten, 1-Penten, 1-Hexen, 1-Hepten, 1-Octen, Cyclobuten, Cyclopenten, Dicyclopenten und Cyclohexen.

[0064] Beispiel geeigneter Diolefine sind Butadien, Isopren, Cyclopentadien und Cyclohexadien.

[0065] Beispiele geeigneter vinylaromatischer Verbindungen sind Styrol, alpha-Methylstyrol, 2-, 3- und 4-Chlor-, -Methyl-, -Ethyl-, -Propyl- und -Butyl- und tert.-Butylstyrol und -alpha-methylstyrol.

[0066] Ein Beispiel einer geeigneten Vinylverbindung bzw. eines funktionalisierten Olefins ist Vinylcyclohexandiol.

[0067] Beispiele geeigneter Vinylether sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Butyl- und Pentylvinylether, Allylmonopropoxylat sowie Trimethylolpropanmono-, -di- und -triallylether.

[0068] Beispiel geeigneter Vinylester sind Vinylacetat und -propionat sowie die Vinylester der Versäure und anderer quartärer Säuren.

[0069] Beispiele geeigneter Vinylamide sind N-Methyl-, N,N-Dimethyl-, N-Ethyl-, N-Propyl-, N-Butyl-, N-Amyl-, N-Cyclopentyl- und N-Cyclohexylvinylamid sowie N-Vinylpyrrolidon und -epsilon-caprolactam.

[0070] Beispiele geeigneter Vinylhalogenide sind Vinylfluorid und -chlorid.

[0071] Beispiele geeigneter Vinylidenhalogenide sind Vinylidenfluorid und -chlorid.

[0072] Beispiele geeigneter Allylether sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Butyl-, Pentyl-, Phenyl- und Glycidylmonoallylether.

[0073] Beispiele geeigneter Allylester sind Allylacetat und -propionat.

[0074] Beispiele geeigneter Ester der Acrylsäure und Methacrylsäure sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, n-Butyl-, Isobutyl-, n-Pentyl-, n-Hexyl-, 2-Ethylhexyl-, Isodecyl-, Decyl-, Cyclohexyl-, t-Butylcyclohexyl-, Norbornyl-, Isobornyl-, 2- und 3-Hydroxypropyl-, 4-Hydroxybutyl-, Trimethylolpropanmono-, Pentaerythritmono- und Glycidyl(meth)acrylat. Außerdem können noch die Di-, Tri- und Tetra(meth)acrylate von Ethylenglykol, Di-, Tri- und Tetraethylenglykol, Propylenglykol, Dipropylenglykol, Butylenglykol, Dibutylenglykol, Glycerin, Trimethylolpropan und Pentaerythrit in Betracht. Allerdings werden sie nicht alleine, sondern immer in untergeordneten Mengen gemeinsam mit den monofunktionellen Monomeren verwendet.

[0075] Beispiele geeigneter Amide der Acrylsäure Methacrylsäure sind (Meth)Acrylsäureamid sowie (Meth)Acrylsäure-N-methyl-, -N,N-dimethyl-, -N-ethyl-N-propyl-, -N-butyl-, -N-amy-, -N-cyclopentyl- und -N-cyclohexylamid.

[0076] Beispiele geeigneter Nitrile sind Acrylnitril und Methacrylnitril.

[0077] Beispiele geeigneter Ester, Amide, Imide und Anhydride der Maleinsäure, Fumarsäure und Itaconsäure sind Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäuredimethyl-, -diethyl-, -dipropyl- und -dibutylester, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäurediamid, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäure-N,N'-dimethyl-, -N,N,N',N'-tetramethyl-, -N,N'-diethyl-, -N,N'-dipropyl-, -N,N'-dibutyl-, -N,N'-diamyl-, -N,N'-dicyclopentyl- und -N,N'-dicyclohexyldiamid, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäureimid und Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäure-N-methyl-, -N-ethyl-, -N-propyl-, -N-butyl-, -N-amy-, -N-cyclopentyl-

und -N-cyclohexylimid sowie Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäureanhydrid.

[0078] Die vorstehend beschriebenen Monomeren können radikalisch, kationisch oder anionisch polymerisiert werden.

Vorteilhafterweise werden sie radikalisch polymerisiert. Hierzu können die üblichen und bekannten anorganischen Radikalstarter oder Initiatoren wie Wasserstoffperoxid oder Kaliumperoxodisulfat oder die üblichen und bekannten organischen Radikalstarter oder Initiatoren wie Dialkylperoxide, z. B. Di-tert.-Butylperoxid, Di-tert.-amylperoxid und Dicumylperoxid; Hydroperoxide, z. B. Cumolhydroperoxid und tert.-Butylhydroperoxid; Perester; z. B. tert.-Butylperbenzoat, tert.-Butylperpivalat, tert.-Butylper-3,5,5-trimethylhexanoat und tert.-Butylper-2-ethylhexanoat; Bisazoverbindungen wie Azobisisobutyronitril; oder C-C-Starter wie 2,3-Dimethyl-2,3-diphenylbutan oder -hexan verwendet werden. Es kommt indes auch Styrol in Betracht, das Polymerisation auch ohne Radikalstarter thermisch initiiert.

[0079] Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren wird mindestens eines der vorstehend beschriebenen Monomere über einen seitlichen Zulauf in den Einlassbereich des erfindungsgemäßen Taylorreaktors dosiert. Vorzugsweise werden mindestens einer der vorstehend beschriebenen Radikalstarter oder Initiatoren vorzugsweise zusammen mit mindestens einem Monomeren über einen weiteren seitlichen Zulauf zudosiert.

[0080] Das Monomer oder die Monomeren werden in dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen zumindest teilweise unter den Bedingungen der Taylorströmung polymerisiert. Das resultierende flüssige Polymerisat wird aus dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen in den Auslassbereich und von da aus in den Produktablauf gefördert und über das Druckhalteventil ausgetragen.

[0081] Vorzugsweise sind bei dem erfindungsgemäßen Verfahren in einem Teil des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens oder im ganzen ringspaltförmigen Reaktionsvolumen, insbesondere im ganzen ringspaltförmigen Reaktionsvolumen, die Bedingungen für die Taylorströmung erfüllt.

[0082] Die Temperatur des Reaktionsmediums kann bei dem erfindungsgemäßen Verfahren breit variieren und richtet sich insbesondere nach dem Monomeren mit der niedrigsten Zersetzungstemperatur, nach der Temperatur, bei der die Depolymerisation eingesetzt, sowie nach der Reaktivität des oder der Monomeren und der Initiatoren. Vorzugsweise die Polymerisation bei Temperaturen von 100 bis 200, bevorzugt 130 bis 180 und insbesondere 150 bis 180°C durchgeführt.

[0083] Die Polymerisation kann unter Druck durchgeführt werden. Vorzugsweise liegt der Druck bei 1 bis 100, bevorzugt 1 bis 25 und insbesondere 1 bis 15 bar.

[0084] Die Durchlaufzeit kann breit variieren und richtet sich insbesondere nach der Reaktivität der Monomeren und der Größe, insbesondere der Länge des erfindungsgemäßen Tater Reaktors. Vorzugsweise liegt die Durchlaufzeit bei 15 Minuten bis 2 Stunden, insbesondere 20 Minuten bis 1 Stunde.

[0085] Es ist ein ganz besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Taylorreaktors und des erfindungsgemäßen Verfahrens, dass der Umsatz der Monomeren > 70 Mol% ist. Überraschenderweise können Umsätze > 80, bevorzugt > 90, besonders bevorzugt > 95, ganz besonders bevorzugt > 98 und insbesondere > 98,5 Mol% problemlos erzielt werden. Dabei kann sich, wie dies bei der Polymerisation in Masse üblich ist, die kinematische Viskosität v mindestens verzehnfachen, insbesondere mindestens verhundertfachen.

[0086] Das Molekulargewicht der mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens hergestellten Polymerisate kann breit variieren und ist im wesentlichen nur durch die maxi-

male kinematische Viskosität ν bei der der erfindungsgemäße Taylorreaktor die Bedingungen der Taylorströmung aufrechterhalten kann, begrenzt. Vorzugsweise liegen die zahlenmittleren Molekulargewichte der in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Polymerisate bei 800 bis 50.000, bevorzugt 1.000 bis 25.000 und insbesondere 1.000 bis 10.000 Dalton. Vorzugsweise ist die Uneinheitlichkeit des Molekulargewichts < 10 , insbesondere < 8 .

[0087] Die Fig. 1 zeigt eine bevorzugte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Taylorreaktors in schematischer Darstellung.

[0088] In der Fig. 1 haben die Bezugszeichen die folgende Bedeutung:

- (1) Taylorreaktor,
- (2) ringspaltförmiges Reaktionsvolumen,
- (3) äußere Reaktorwand,
- (4) Rotor,
- (4.1) drehbar gelagertes Ende des Rotors (4),
- (4.2) nicht gelagertes Ende des Rotors (4),
- (5) Reaktorboden,
- (6) Gleitringdichtung,
- (7) Antriebswelle,
- (8) Einlassbereich,
- (8.1) seitliche Zulaufe im Einlassbereich (8),
- (9) Auslassbereich,
- (10) Produktablauf,
- (10.1) das dem Auslassbereich (9) entgegengesetzte Ende des Produktablaufs,
- (11) Druckhalteventil und
- (12) Mischvorrichtungen (optional).

[0089] Wegen der hohen Umsätze ist das erfindungsgemäße Verfahren ganz besonders wirtschaftlich, weil die nachträgliche Abtrennung von umgesetzten Monomeren und deren Rückführung in das Reaktionsmedium entfallen kann. Damit entfallen aber auch alle sicherheitstechnischen, verfahrenstechnischen, toxikologischen und ökologischen Probleme und Geruchsbelästigungen, die mit einem hohen Monomergehalt verbunden sind. Außerdem kann das erfindungsgemäße Verfahren besonders lange betrieben werden, ohne dass es dabei zu einer Blasenbildung und/oder Anlagerung von Polymerisaten kommt. Dadurch werden besonders hohe Ausbeuten an Polymerisaten erzielt.

[0090] Die in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Polymerisate weisen weitere besondere Vorteile auf. So eignen sie sich hervorragend für alle Anwendungszwecke, wie sie üblicherweise für Polymerisate vorgesehen sind, wie beispielsweise die Herstellung von Formteilen und Folien. Vor allem aber kommen sie als Bestandteile von Beschichtungsmitteln, Klebstoffen und Dichtungsmassen in Betracht. Hierbei werden sie insbesondere als Bindemittel verwendet, weil die Beschichtungsmittel, Klebstoffe und Dichtungsmassen die in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Bindemittel enthalten oder hieraus bestehen, besonders vorzügliche anwendungstechnische Eigenschaften aufweisen.

[0091] Die besonderen Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens und der hiermit hergestellten Bindemittel treten vor allem anhand der Beschichtungsmittel zutage, die die betreffenden Bindemittel enthalten. Diese Beschichtungsmittel sind je nach ihrer Zusammensetzung physikalisch trocknend oder werden thermisch, mit aktinischem Licht, insbesondere UV-Licht, oder durch Elektronenstrahlung gehärtet.

[0092] Sie liegen als Pulverlacke, Pulverslurry-Lacke, in organischen Medien gelöste Lacke, wässrige Lacke oder als im wesentlichen oder völlig lösemittel- und wasserfreie, flüssige Lacke (100%-Systeme) vor. Hierbei können sie Farb- und/oder Effektpigmente enthalten. Sie werden als

Bautenanstrichmittel für den Innen- und Außenbereich, als Lacke für Möbel, Türen, Fenster, Glashohlkörper, Coils, Container, weiße Ware und andere industrielle Anwendungen, als Automobillacke für die Erstausrüstung (OEM) oder als Autoreparaturlacke verwendet. Bei ihrer Verwendung auf dem Automobilsektor kommen sie als Elektrotacklacke, Füller, Unidecklacke, Basislacke und Klarlacke in Betracht.

Beispiel 3

Die kontinuierliche Herstellung eines Copolymerisats mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens

[0093] Für die Herstellung des Copolymerisats wurde der erfindungsgemäße Taylorreaktor (1) der Fig. 1 verwendet. Der Taylorreaktor wurde in senkrechter Stellung betrieben, wobei die Durchflussrichtung entgegen der Schwerkraft war. Alle Anlagenteile waren über einen Doppelmantel beheizbar. Dieser war unterteilt, wobei der konische Teil der äußeren Reaktorwand (3) zwei Heizzonen und die anderen Anlagenteile jeweils nur eine Heizzone aufwiesen. Die Temperierung des Taylorreaktors (1) erfolgte mittels zweier Thermostate. Der erste Thermostat war an die untere Heizzone der äußeren Reaktorwand (3) im Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeschlossen. Die restlichen Heizzonen wurden über den zweiten Thermostaten temperiert. Die Temperaturen des Reaktionsmediums bzw. des Copolymerisats im Auslassbereich (9) wurden durch die Angleichung der Thermostatttemperaturen per Hand geregelt. Es wurde eine Temperatur von 160°C eingestellt.

[0094] Der erfindungsgemäße Taylorreaktor wies ein ringspaltförmiges Reaktionsvolumen (2) von 1.666 ml auf. Das Volumen des Auslassbereichs (9) lag bei 287 ml. Die Drehzahl des Rotors (4) betrug 300 U/min. Die Polymerisation wurde bei 160°C und 2 bar durchgeführt. Die Verweilzeit bzw. Durchlaufzeit betrug 35,3 Minuten, die Versuchsdauer 4 Stunden.

[0095] Der Taylorreaktor (1) wurde vollständig mit dem organischen Lösemittel Shellsol ® gefüllt, um über das Druckhalteventil (11) den für die Polymerisation notwendigen Druck aufzubauen und die Polymerisationstemperatur einzustellen. Der Rotor (4) wurde vor der Zudosierung der Zulaufe in Betrieb genommen. Das organische Lösemittel wurde anschließend durch die Monomer- und Initiatorzulaufe verdrängt. Der Vorlauf an Copolymerisat wurde verworfen.

[0096] Für die Copolymerisation wurde eine Monomermischung, bestehend aus 2.881,5 g Styrol, 3.006,8 g Methylmethacrylat und 4.510,2 g Hydroxypropylmethacrylat, mit einem Massestrom von 43,33 g/min mit einer Mischung, bestehend aus 43,8 g Di-tert.-butylperoxid (DTBP), 20,3 g tert.-Butylperoxyethylhexanoat (TBPEH), 587,6 g Dicumylperoxid (DCP) und 2.129,8 g tert.-Butylcyclohexylacrylat, mit einem Massestrom von 12,02 g/min vermischt. Die resultierende Mischung wurde mit einem Massestrom von 55,35 g/min über einen seitlichen Zulauf (8.1) in den Eingangsbereich (8) eindosiert. Die Vermischung und Zudosierung erfolgte über rechnergesteuerte Kolbenmembranpumpen. Während der Polymerisation wurde der Druck per Hand am Druckhalteventil (11) geregelt.

[0097] Das nach dem Vorlauf resultierende Polymerisat wurde über das Druckhalteventil (11) kontinuierlich ausgebracht und über ein isoliertes Rohr in einen Auffangbehälter geleitet. Die wesentlichen Eigenschaften des Polymerisats wurden in regelmäßigen Zeitabständen (1, 2 und 3 Stunden) ermittelt. Das Polymerisat wies während der kontinuierlichen

chen Massepolymerisation ein gleichbleibendes Eigenschaftsprofil auf. Sein zahlenmittleres Molekulargewicht lag bei 2.827 Dalton und sein massenmittleres Molekulargewicht bei 16.089 Dalton. Die Uneinheitlichkeit des Molekulargewichts betrug demnach 5,7. Der Umsatz, ermittelt mit Hilfe der Gaschromatographie, lag bei 99,1 Mol%. Die Schmelzviskosität des Polymerisats bei 160°C war 4,24 Pa · s und war somit etwa um den Faktor 2×10^3 höher als die Viskosität des Reaktionsmediums im Einlassbereich (8).

[0098] Das Polymerisat war hervorragend für die Herstellung von Beschichtungsstoffen, Klebstoffen und Dichtungsmassen geeignet.

Patentansprüche

1. Taylorreaktor (1), umfassend
 1. ein ringspaltförmiges Reaktionsvolumen (2), das
 - 1.1 sich in der Durchflussrichtung des Reaktionsmediums verbreitert und zu einem Auslassbereich (9) hin öffnet und durch
 - 1.1.1 eine äußere Reaktorwand (3),
 - 1.1.2 einen konzentrisch angeordneten Rotor (4), der an seinem einen Ende (4.1) im Reaktorboden (5) drehbar gelagert und an seinem anderen Ende (4.2) unterhalb des Auslassbereichs (9) nicht gelagert ist, wobei der Rotor (4) an seinem gelagerten Ende (4.1) den größten Durchmesser oder den gleichen Durchmesser wie an seinem nicht gelagerten Ende (4.2) hat, und
 - 1.1.3 einen Reaktorboden (5) mit einer Dichtung (6) für die Antriebswelle (7)
 - definiert wird,
 2. einen Einlassbereich (8) im engsten Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) oberhalb des Reaktorbodens (5) mit mindestens einem seitlichen Zulauf (8.1) und/oder mindestens einem Zulauf (8.1) durch den Reaktorboden für die Edukte und/oder die Prozessstoffe,
 3. einen von Totvolumina freien Auslassbereich (9), der
 - 3.1 oberhalb des nicht gelagerten Endes (4.2) des Rotors (4) und des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeordnet ist,
 - 3.2 sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) hinaus in Durchflussrichtung weiter verbreitert oder gleich bleibt und
 - 3.3 sich anschließend zu einem Produktablauf (10) hin verjüngt.
 4. einen von Totvolumina freien Produktablauf (10), der
 - 4.1 sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich (9) hin öffnet und
 - 4.2 sich in die andere Richtung hin verjüngt, sowie
 5. an dem dem Auslassbereich (9) entgegengesetzten Ende (10.1) des Produktablaufs (10) ein Druckhalteventil (11).
2. Taylorreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) einen kreisförmigen Umfang hat.
3. Taylorreaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass sich das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) nach geeigneten mathematischen Funktionen kontinuierlich oder diskontinuierlich verbreitert.

4. Taylorreaktor nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass die mathematischen Funktionen Geraden, mindestens zwei Geraden, die unter einem stumpfen Winkel aufeinander stoßen, Hyperbeln, Parabeln, e-Funktionen oder Kombinationen dieser Funktionen, die kontinuierlichen oder diskontinuierlich ineinander übergehen, sind.

5. Taylorreaktor nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass sich das Reaktionsvolumen kontinuierlich verbreitert.

6. Taylorreaktor nach Anspruch 4 oder 5, dadurch gekennzeichnet, dass die mathematischen Funktionen Geraden sind.

7. Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die äußere Reaktorwand (3) zylinderförmig und der Rotor (4) konisch ist, wobei der Rotor (4) an seinem gelagerten Ende (4.1) den größten Durchmesser hat.

8. Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die äußere Reaktorwand (3) konisch und der Rotor (4) zylinderförmig sind.

9. Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass das nicht gelagerte Ende (4.1) des Rotors (4) planar, abgerundet oder kegelförmig sind.

10. Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Dichtung (6) eine Gleitringdichtung ist.

11. Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass dem Zulauf (8.1) eine Mischvorrichtung (12) für die Edukte und/oder die Prozessstoffe vorgeschaltet ist.

12. Verwendung des Taylorreaktors (1) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 11 für Stoffumwandlungen unter den Bedingungen der Taylorströmung, bei denen sich die kinematische Viskosität ν im Reaktionsmedium in Durchflussrichtung erhöht.

13. Verwendung nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass der Taylorreaktor (1) für die Herstellung von Polymerisaten, Copolymerisaten, Blockcopolymerisaten, Pfropfmischpolymerisaten, Polykondensations- und Polyadditionsprodukten, Kern-Schale-Latices, Polymerdispersionen, von Produkten durch polymeranaloge Reaktionen, wie die Veresterung, Amidierung oder Urethanisierung von Polymeren, welche Seitengruppen enthalten, die für solche Reaktionen geeignet sind, von olefinisch ungesättigten, mit Elektronenstrahlen oder ultraviolettem Licht härtbaren Materialien oder von Mesosphasen verwendet wird.

14. Verwendung nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, dass der Taylorreaktor (1) der Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten durch die radikalische, anionische oder kationische (Co)Polymerisation, Blockmischpolymerisation und Pfropfmischpolymerisation mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomeren dient.

15. Verfahren zur kontinuierlichen Herstellung von (Co)Polymerisaten, Blockmischpolymerisaten und Pfropfmischpolymerisaten (Polymerisaten) durch die radikalische, anionische oder kationische (Co)Polymerisation, Blockmischpolymerisation und Pfropfmischpolymerisation (Polymerisation) mindestens eines olefinisch ungesättigten Monomeren in Masse in einem Taylorreaktor, dadurch gekennzeichnet, dass man

(I) mindestens ein olefinisch ungesättigtes Monomer über mindestens einen seitlichen Zulauf (8.1) und/oder mindestens einen Zulauf (8.1) durch den

Reaktorboden (5) in den Einlassbereich (8) eines Taylorreaktors (1) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 11 dosiert, wobei der Einlassbereich (8) sich im engsten Bereich des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) oberhalb des Reaktorbodens (5) befindet, und

(II) in dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (2) zumindest teilweise unter den Bedingungen der Taylorströmung (co)polymerisiert, blockmischpolymerisiert oder pfropfmischpolymerisiert (polymerisiert), wobei das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2)

1.1 sich in der Durchflussrichtung des Reaktionsmediums verbreitert und zu dem Auslassbereich (9) hin öffnet und durch

1.1.1 die äußere Reaktorwand (3),

1.1.2 den konzentrisch angeordneten Rotor (4), der an seinem einen Ende (4.1) im Reaktorboden (5) drehbar gelagert und an seinem anderen Ende (4.2) unterhalb des Auslassbereichs (9) nicht gelagert ist, wobei der Rotor (4) an seinem gelagerten Ende (4.1) den größten Durchmesser oder den gleichen Durchmesser wie an seinem nicht gelagerten Ende (4.2) hat, und

1.1.3 den Reaktorboden (5) mit einer Dichtung (6) für die Antriebswelle (7)

definiert wird,

(III) das resultierende flüssige Polymerisat aus dem ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (2) in den von Totvolumina freien Auslassbereich (9) fördert, der

3.1 oberhalb des nicht gelagerten Endes (4.2) des Rotors (4) und des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) angeordnet ist,

3.2 sich über das ringspaltförmige Reaktionsvolumen (2) hinaus in Durchflussrichtung weiter verbreitert oder gleich bleibt und

3.3 sich anschließend zu einem Produktablauf (10) hin verzweigt,

(IV) das Polymerisat aus dem Auslassbereich (9) in den von Totvolumina freien Produktablauf (10) fördert, der

4.1 sich an seinem größten Durchmesser zum Auslassbereich (9) hin öffnet und

4.2 sich in die andere Richtung hin verzweigt, und

(V) das Polymerisat über das an dem dem Auslassbereich (9) entgegen gesetzten Ende (10.1) des Produktablaufs (10) befindliche Druckhalteventil (11) austrägt.

16. Verfahren nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass in einem Teil des ringspaltförmigen Reaktionsvolumens (2) oder im ganzen ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (2) die Bedingungen für die Taylorströmung erfüllt sind.

17. Verfahren nach Anspruch 15 oder 16, dadurch gekennzeichnet, dass die Polymerisation bei einer Temperatur von 100 bis 200°C durchgeführt wird.

18. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 17, dadurch gekennzeichnet, dass die Polymerisation bei einem Druck von 1 bis 100 bar durchgeführt wird.

19. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 18, dadurch gekennzeichnet, dass die Durchlaufzeit bei 15 Minuten bis 2 Stunden liegt.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 19, dadurch gekennzeichnet, dass der Umsatz > 70 Mol% ist.

21. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 20, dass sich die kinematische Viskosität ν des Reaktionsmediums in Durchflussrichtung mindestens verzehnfacht.

22. Verfahren nach Anspruch 21, dadurch gekennzeichnet, dass sich die kinematische Viskosität ν des Reaktionsmediums in Durchflussrichtung mindestens verhundertfacht.

23. Verfahren nach einem der Ansprüche 15 bis 22, dadurch gekennzeichnet, dass das zahlenmittlere Molekulargewicht der Polymerisate bei 800 bis 50.000 liegt.

24. Verwendung der gemäß einem der Ansprüche 15 bis 23 hergestellten Polymerisate für die Herstellung von Formteilen und Folien oder als Bindemittel für Beschichtungsstoffe, Klebstoffe und Dichtungsmassen.

25. Verwendung nach Anspruch 24, dadurch gekennzeichnet, dass die Beschichtungsstoffe Pulverlacke, Pulverslurry-Lacke, in organischen Medien gelöste Lacke, wässrige Lacke oder im wesentlichen oder völlig lösemittel- und wasserfreie, flüssige Lacke (100%-Systeme) sind.

26. Verwendung nach Anspruch 25, dadurch gekennzeichnet, dass die Beschichtungsstoffe Bautenanstrichmittel für den Innen- und Außenbereich, Lacke für Möbel, Türen, Fenster, Glashohlkörper, Coils, Container, weiße Ware und andere industrielle Anwendungen oder Autmobillacke für die Erstausrüstung (OEM) oder Autoreparaturlacke sind.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

This Page is inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ BLACK BORDERS

☒ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES

☒ FADED TEXT OR DRAWING

☒ BLURED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING

☐ SKEWED/SLANTED IMAGES

☐ COLORED OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS

☐ GRAY SCALE DOCUMENTS

☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT

☐ REPERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images
problems checked, please do not report the
problems to the IFW Image Problem Mailbox**